

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : **01-256584**

(43)Date of publication of application : **13.10.1989**

(51)Int.Cl.

C09K 11/00
C09K 11/06
H05B 33/14

(21)Application number : **63-084000**

(71)Applicant : **IDEMITSU KOSAN CO LTD**

(22)Date of filing : **07.04.1988**

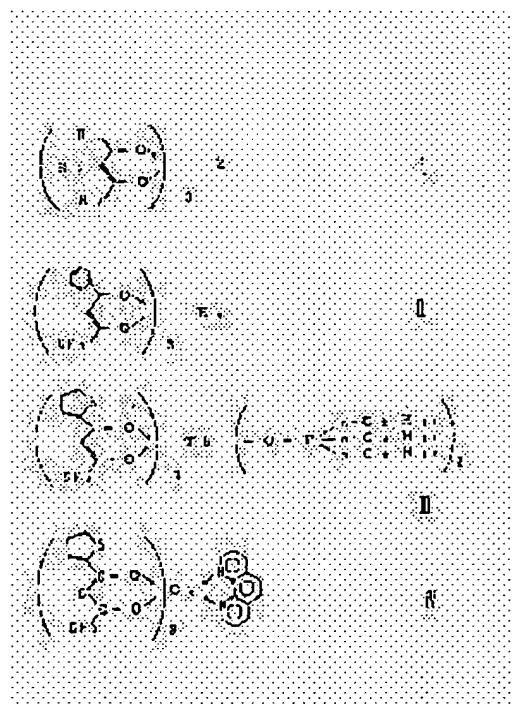
(72)Inventor : **HOSOKAWA CHISHIO**

(54) THIN-FILM EL ELEMENT

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the title element which emits light of a vivid color showing high luminance and a sharp spectrum when a low voltage is applied, by using a specified rare earth complex as the luminescent material.

CONSTITUTION: A rare earth complex of formula I [wherein R1 and R2 are each 1-15C (halogenated) alkyl, 6-14C aryl, or a five- or six-membered heterocyclic group containing one hetero atom; R3 is H or R1; Z is M (rare earth element), MA2 (wherein A is phosphine oxide) or MB (wherein B is phenanthroline)] (e.g., compounds of formulas II-VI) is used as the luminescent material. For example, this luminescent material is put between two electrodes, and a base plate is provided on the outside of one of the electrodes, thus giving the title element.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than

the examiner's decision of rejection or
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

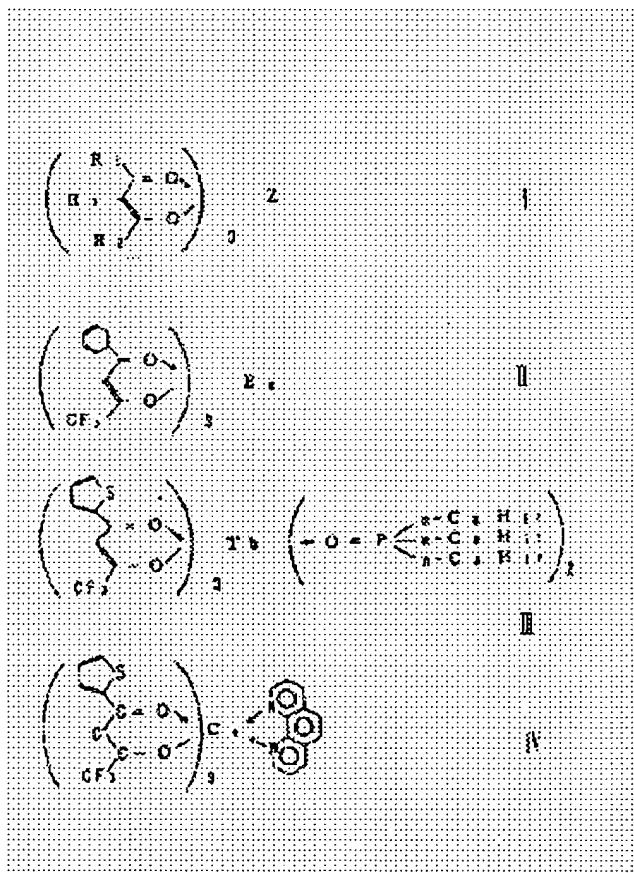
THIN-FILM EL ELEMENT

Patent number: JP1256584
Publication date: 1989-10-13
Inventor: HOSOKAWA CHISHIO
Applicant: IDEMITSU KOSAN CO
Classification:
 - international: C09K11/00; C09K11/06; H05B33/14
 - european:
Application number: JP19880084000 19880407
Priority number(s): JP19880084000 19880407

Report a data error here

Abstract of JP1256584

PURPOSE: To obtain the title element which emits light of a vivid color showing high luminance and a sharp spectrum when a low voltage is applied, by using a specified rare earth complex as the luminescent material.
CONSTITUTION: A rare earth complex of formula I [wherein R1 and R2 are each 1-15C (halogenated) alkyl, 6-14C aryl, or a five- or six-membered heterocyclic group containing one hetero atom; R3 is H or R1; Z is M (rare earth element), MA2 (wherein A is phosphine oxide) or MB (wherein B is phenanthroline)] (e.g., compounds of formulas II-VI) is used as the luminescent material. For example, this luminescent material is put between two electrodes, and a base plate is provided on the outside of one of the electrodes, thus giving the title element.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

② 公開特許公報(A) 平1-256584

⑥ Int. Cl.⁴

識別記号

序内整理番号

④ 公開 平成1年(1989)10月13日

C 09 K 11/00

F-7215-4H

11/06

7215-4H

H 05 B 33/14

7254-3K 審査請求 未請求 請求項の数 2 (全9頁)

⑧ 発明の名称 薄膜EL素子

⑪ 特 願 昭63-84000

⑫ 出 願 昭63(1988)4月7日

⑬ 発 明 者 細 川 地 潮 千葉県君津郡楠ヶ浦町上泉1280番地 出光興産株式会社内

⑭ 出 願 人 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

⑮ 代 理 人 弁理士 渡辺 喜平

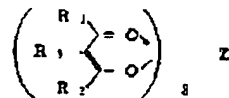
明 細 書

1. 発明の名称

薄膜EL素子

2. 特許請求の範囲

(1) 式



で置わされる希土類錯体を発光材料として用いたことを特徴とする薄膜EL素子。

上記式中、

R₁ および R₂ は、それぞれ独立に炭素数1～15のアルキル基、ハロゲン化炭素数1～15のアルキル基、炭素原子6～14個のアリール基、ヘテロ原子1個を含む5員もしくは6員環の複素環式基の意味である。

R₃ は、水素原子または基R₁と同じ意味である。

Z は、① M (ここでMは、希土類元素の意味である。)

② MA (ここでAは、ホスフィンオキッドであり、Mは上記と同じ意味である。)

③ MB (ここでBは、フェナントロリンであり、Mは上記と同じ意味である。)

で置わされる部分である。

(2) 発光材料を二枚の電極で挟み、そのうち一方の電極の外側に基板を貼付したことを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の薄膜EL素子。

3. 発明の詳細な説明

[産業上の利用分野]

本発明は、低い駆加電圧で、高輝度かつ鮮やかな色彩の発光を得られる薄膜EL(エレクトロルミネッセンス)素子に関する。

[従来技術と解決すべき問題点]

EL素子は、自己発光のため視認性が高く、また完全固体素子であるため耐衝撃性に優れるとい

特開平1-256584 (2)

う特徴を有しており、現在、有機発光体である $ZrSiO_4$ を用いた SiO_2 膜子が広く使用されている。しかしながら、このような無機 SiO_2 膜子は、発光させるための印加電圧が200V近く必要のため、駆動方法が複雑である。

一方、有機誘導体 SiO_2 膜子は、印加電圧を大幅に低下させることができるため、各種材料を用いたものが開発されつつある。既にザインセツトは、アトラセンを発光体とし、膜厚を約0.5 μm とした誘導体を用いて SiO_2 膜子を作製し、印加電圧30Vにて青色の明所可視発光を得ている (Thin Solid Films, 94 (1992) 171)。しかし、この膜子は輝度が不十分であり、印加電圧も依然として高くしなければならないという問題がある。

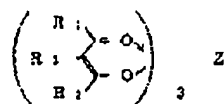
また近年に鑑みれば、10V程度の低電圧を印加するだけで5~90 cd/m²の輝度の発光を示す有機 SiO_2 膜子が、 SiO_2 法 (ラングミュア・ブロッジェット法) を用いた誘導体にて作製されている (例えば、特開昭61-43682号)。しかしながら、この

有機 SiO_2 膜子は、 SiO_2 法による分子膜の厚積によって電子受容性と電子供与性の発光性物質の積層膜を作製するため、膜底が複雑であるとともに、膜面が傾斜であり、実用性に欠けるという問題がある。

さらに、25V以下の低電圧印加で高輝度を実現する有機 SiO_2 膜子も開発されている (例えば、特開昭59-194293号)。この SiO_2 膜子は、電極/正孔注入層/発光層/電極とした積層型のものであるが、電極間の膜厚が1 μm 以下であることが必要であり、そのためピンホールが生じやすく、生産性が低いという大きな問題がある。

上述した従来の有機誘導体 SiO_2 膜子は、上記それぞれの問題点のほかに、発光の問題点として劣化に劣るという問題があった。すなわち、上述の有機誘導体 SiO_2 膜子は、発光スペクトルの幅が広いため、色の鮮やかさに劣り、単一の青、緑、赤といった色の三原色を表現しにくいという問題点があった。

なお、発光層を二重構造とし、その発光性有機



で表わされる希土類錯体を発光材料として用いた構成としてある。

なお、上記式中、

R_1 および R_2 は、それぞれ独立に炭素数1~15のアルキル基、ハロゲン化した炭素数1~15のアルキル基、炭素原子6~14個のアリール基、ヘテロ原子1個を含む5員もしくは6員の複素環式基の意味である。

R_3 は、水素原子または基 R_1 と同じ意味である。

Z は、① M (ここで M は、希土類元素の意味である。)

② MA (ここで A は、ホスフィンオキシドであり、 M は上記と同じ意味である。)

③ MB (ここで B は、フェナントロリンであり、 M は上記と同じ意味であ

化合物として希土類錯体等を用い、低電圧でも十分輝度の高い発光を得られる有機 SiO_2 膜子も開発されている (例えば、特開昭61-07867号)。しかしながら、ここに示されている希土類錯体はその一部であり、しかも、これら一部希土類錯体を発光材料として用いた SiO_2 膜子の発光する色の影響、すなわち、色の鮮やかさに関する改善についてはなんら開示がない。

本発明は上記事情にかんがみてなされたもので、低電圧印加により、高輝度かつ狭いスペクトルを示し鮮明な色を発光する誘導体 SiO_2 膜子の提供を目的とする。

【問題点の解決手段】

本発明者は、上記目的を達成するため、鋭意研究を続けてきた結果、発光材料に、ある希土類錯体を用いると、誘導体 SiO_2 膜子の発光する色の影響に大きな影響を与えることを知見し本発明を完成するに至った。すなわち、本発明の誘導体 SiO_2 膜子は、式

特開平1-256584(3)

る。)

で表わされる部分である。

なお、本発明の結膜EL素子は、上記発光材料を二枚の電極で挟み、そのうち一方の電極の外側に基板を設けた構成とすることが好ましい。

以下、本発明の解決手段を詳細に説明する。

本発明の結膜EL素子は、AC(交差)駆動型およびDC(直交)駆動型のいずれにも用いることができるが、以下の説明は第1図を参照しつつDC駆動型について行なう。

第1図において、1は基板であり、ガラス、プラスチックあるいは石英等によって形成してある。2および3は発光層4を挟む電極であり、このうち、一方の電極2は基板1上に形成され、ITO(インジウムチンオキシド)、 SnO_2 (酸化錫二価)、 ZnO (酸化亜鉛)等により透明もしくは半透明の電極としてある。この電極2は、通常50nm~1μmの膜厚とし、透明性の点からすると、50~150nmとすることが好ましい。また、他方の電極3は背面(対向)電極とし

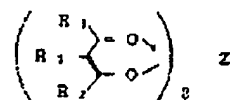
て透明しており、金、アルミニウム、マグネシウム、インジウム等の金属を用いている。この背面電極3は、通常50~200nmの膜厚とする。

なお、結膜EL素子のタイプによっては、基板1側の電極2を全面の背面電極とし、他の電極3を透明もしくは半透明の電極とすることも可能である。

発光層4は、ある希土類錯体からなる発光材料により、100nm~5μmの膜厚に形成している。

この発光材料の希土類錯体としては、

式



で表わされるものを用いる。

このうち、 R_1 および R_2 は、それぞれ独立に、

炭素数1~15のアルキル基、例えば、メチル

基、エチル基、プロピル基、ブチル基、1-プロピル基、1-ブチル基、1-ペンチル基、3-ペンチル基、オクチル基あるいは、ノニル基等である。

ハロゲン化した炭素数1~15のアルキル基(ここでハロゲンとは、塩素、フッ素、臭素等である)、例えば、トリフルオロメチル基、ペプタフルオロプロピル基、トリクロロメチル基、トリブromoメチル基、ジクロロメチル基、クロロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、ジブromoメチル基あるいは、ブromoメチル基等である。

炭素原子8~14個のアリール基、例えば、フェニル基、ナフチル基、トリル基、キシリル基あるいは、アントリル基等である。

ヘテロ原子、例えば酸素、硫黄もしくは窒素1個を含む5員もしくは6員の複素環式基、例えば、ピロリル基、フリル基、チエニル基あるいは、ピリジル基等であり、

R_3 は水素または基 R_1 と同じ意味である。

さらに、部分Zは、

第一に、Mとして表わされ、

ここでMは、希土類元素であり、Ce(セリウム)、Th(チルビウム)、Pr(プラセオジウム)、Gd(ガドリウム)、Er(エルビウム)、Tm(ツリウム)等がある。

本例における希土類錯体としては、例えば、EとBPA(ベンゾイルトリフルオロアセトン)からなる[E・(BPA)₃]を挙げられる。

これを構造式で示すと、



として表わされる。

第二に、MA₃で表わされ、

ここでAはホスフィンオキシド、例えば、トリアルキルホスフィンオキシドであり、そのアルキル部分には炭素原子8~12個を含むもの、例え

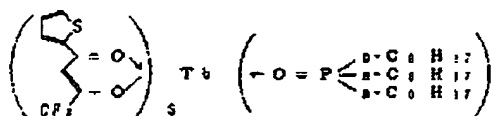
特開平1-256584(4)

び、 n -オクチル基(炭素8個)を含むことができる。

M は、上記 M と同じ意味である。

本例における希土類錯体としては、例えば、 T とTTA(チノイルトリフルオロアセトン)とTOPO(トリ- n -オクチルホスフィンオキシド)からなる $[T_3(TTA)_3(TOPO)_3]$ を挙げられる。

これを構造式で示すと、



として表わされる。

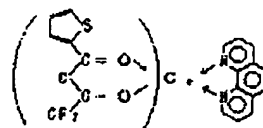
第三に、MBとして表わされ、

ここで B は、フェナントロリンであり、 M は上記 M と同じ意味である。

本例における希土類錯体としては、 E とTTAとPhen(フェナントロリン)からなる $[E_3(TTA)_3(Phen)_3]$ 、 S とNTFA

(2-ナフトイルトリフルオロアセトン)とPhenからなる $[S_3(NTFA)_3(Phen)_3]$ および C とTTAとPhenからなる $[C_3(TTA)_3(Phen)_3]$ 等を挙げられる。

$[C_3(TTA)_3(Phen)_3]$ を構造式で示すと、

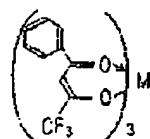


として表わされる。

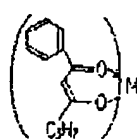
上記希土類を具体的に例示すれば、次の(1-1)~(6-6)で表わすことができる。

【以下余白】

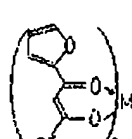
(1-1)BFA



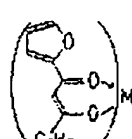
(1-4)



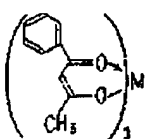
(2-1)



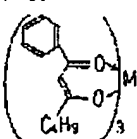
(2-4)



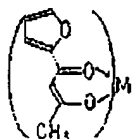
(1-2)



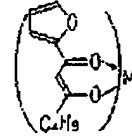
(1-5)



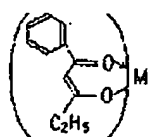
(2-2)



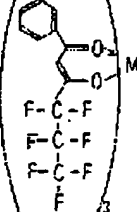
(2-5)



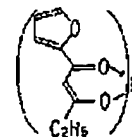
(1-3)



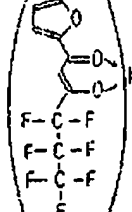
(1-6)



(2-3)

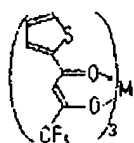


(2-6)

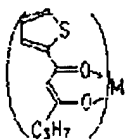


特開平1-256584 (5)

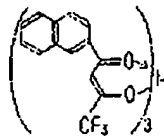
(3-1) TTA



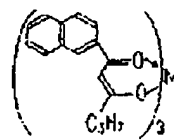
(3-4)



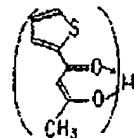
(4-1) NTFA



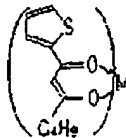
(4-4)



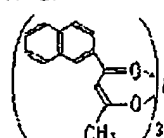
(3-2)



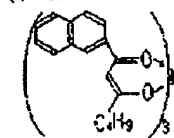
(3-5)



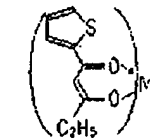
(4-2)



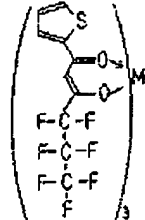
(4-5)



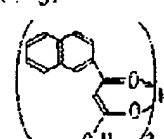
(3-3)



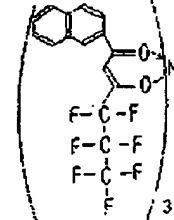
(3-6)



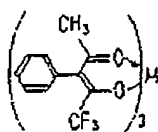
(4-3)



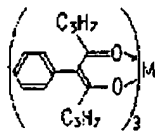
(4-6)



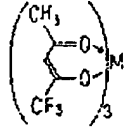
(5-1)



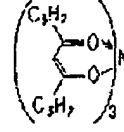
(5-4)



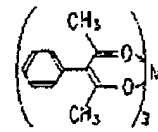
(6-1)



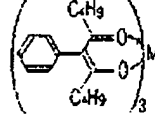
(6-4)



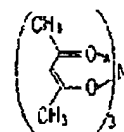
(5-2)



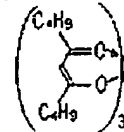
(5-5)



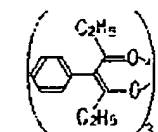
(6-2)



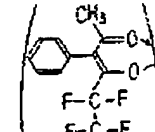
(6-5)



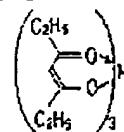
(5-3)



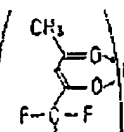
(5-6)



(6-3)



(6-6)



特開平1-256584(6)

ここで、 M は希土類元素を置き、上記(1-1)～(6-6)には、1,10-フenantロリン、トリオクチルホスフィンオキシドを付加することもできる。

上記のような構成からなる導膜51素子は、次のような手順で作成する。

まず、基板1上に透明電極2を蒸着法あるいはスパッタ法などで導膜形成する。次いで、この透明電極2の上面に発光材料を導膜化してなる発光層4を形成する。このときの導膜化は、スピコンコート法、キャスト法、LB法あるいは蒸着法などにより行ない、膜の均一性およびピンホールの除去等の点からすると、次の蒸着条件により蒸着を行なうことが好ましい。

(蒸着条件)

ポート加熱条件: 50～300℃

真空度: $1.0 \times 10^{-3} \sim 1.0^{-2} \text{Pa}$

蒸着速度: 0.1～50 nm/sec

基板温度: -50～200℃

膜厚: 100nm～5μm

導膜を得た。このときの基板温度は、室温であった。

次いで、これを真空層より取り出し、発光体導膜上にステンレススチール製のマスクを導膜し、再び基板ホルダーに固定し、モリブデン製の抵抗加熱ポートに金20nmを入れて真空槽を $1 \times 10^{-4} \text{Pa}$ まで減圧した。その後、ポートを1400℃まで加熱し、100nmの膜厚で金電極を導膜上に形成し対向電極とした。

この素子に直流電圧30Vを、金電極を正極とし、ITO電極を負極として印加したところ、電流が10mA流れ、赤色発光を得た。このときの発光極大強度は818nm、発光強度は80cd/m²であった。CIE色度座標は $x=0.65$ 、 $y=0.34$ であり、鮮明な赤色であった。

実施例2

実施例1と同様の加熱ポートに、 $[\text{Ti}:(\text{TTA}):(\text{TOPPO})]$ 結体を200nm入れ真空槽を $1 \times 10^{-4} \text{Pa}$ まで減圧した。ここで $[\text{Ti}:(\text{TTA}):(\text{TOPPO})]$ は、塩化Tiの水溶液を

その後、発光層4の上面に、背面電極3を蒸着法あるいはスパッタ法などで導膜形成する。

[実施例]

実施例1

25nm×75nm×1.2nmのガラス基板上にITOを蒸着法にて50nmの厚さに製膜したものを透明支持基板とし、この支持基板を真空蒸着装置(日本真空技術株式会社製)の基板ホルダーに固定し、モリブデン製の抵抗加熱ポートに $[\text{Eu}:(\text{BFA})]$ 結体を200nm入れ真空槽を $1 \times 10^{-4} \text{Pa}$ まで減圧した。ここで、 $[\text{Eu}:(\text{BFA})]$ は、PH4、5のEu、酢酸塩水溶液にBFAのシクロヘキサン溶液を加えることによって合成する。 $[\text{Eu}:(\text{BFA})]$ は、水溶液中よりシクロヘキサン溶液中に移行する性質を有するので、これにより抽出することができる。抽出後、溶液を減圧下除去し $[\text{Eu}:(\text{BFA})]$ を得、これを精製した。

また、前記ポートを110℃まで加熱し、蒸着速度1.0nm/secで膜厚1.5μmの発光体

PH4、5に調整し、これに $2 \times 10^{-4} \text{mol}$ のTOPPO、 $5 \times 10^{-4} \text{mol}$ のTTAのヘキサン溶液を加えて混合し、その後抽出を行なった。さらに、溶液を減圧下除去し、 $[\text{Ti}:(\text{TTA}):(\text{TOPPO})]$ を得、これを精製した。

また、前記ポートを1400℃まで加熱し、蒸着速度1.0nm/secで膜厚1.2μmの発光体導膜を得た。このときの基板温度は、室温であった。次いで、実施例1と同様に金対向電極を形成し素子とした。

この素子に直流電圧20Vを印加したところ、電流が1.5mA流れ、黄緑色発光を得た。このときの発光極大強度は545nm、発光強度は760cd/m²であった。CIE色度座標は $x=0.24$ 、 $y=0.56$ であり、鮮明な黄緑色であった。

実施例3

実施例1と同様の加熱ポートに、 $[\text{Eu}:(\text{TTA}):(\text{Phen})]$ 結体を200nm入れ真空槽を $1 \times 10^{-4} \text{Pa}$ まで減圧した。ここで $[\text{Eu}:(\text{TTA})]$

特開平1-256584 (7)

(Phen)] は、塩化E_vの水溶液をPH5.5に調整し、これにPhenをアセトンとベンゼンの1:1混合溶液に溶かしたものを混合して抽出を行なった。さらに、溶液を減圧下除去し【E_v(TTA)】(Phen)]を得、これを精製した。

また、前記ポートを140℃まで加熱し、蒸着速度1.0nm/secで【E_v(TTA)】(Phen)]結体を透明支持基板上に蒸着し膜厚約1.2μmの発光体薄膜を得た。このときの基板温度は、室温であった。次いで、実施例1と同様に金対向電極を形成し素子とした。

この素子に直流電圧30Vを印加したところ、電流が2.4mA流れ、赤色発光を得た。このときの発光最大波長は618nm、発光輝度は280cd/m²であった。CIE色度座標はx=0.65, y=0.34であり、鮮明な赤色であった。

実施例4

実施例1と同様の加熱ポートに、【S_a(NTFA)】(Phen)]結体を200mg入れ真空槽を1×

10⁻⁴Paまで減圧した。ここで【C_e(TTA)】(Phen)]は、塩化C_eの水溶液をPH4.5に調整し、これにPhenをアセトンとベンゼンの1:1混合溶液に溶かしたものを混合して抽出を行なった。さらに、溶液を減圧下除去し【C_e(TTA)】(Phen)]を得、これを精製した。

また、前記ポートを145℃まで加熱し、蒸着速度1.0nm/secで膜厚1.3μmの発光体薄膜を得た。このときの基板温度は、室温であった。次いで、実施例1と同様に金対向電極を形成し素子とした。

この素子に直流電圧50Vを印加したところ、電流が6.8mA流れ、青黄色発光を得た。このときの発光最大波長は400nm、発光輝度は89cd/m²であった。CIE色度座標はx=0.17, y=0.02であり、鮮明な青黄色であった。

上記の結果、本発明の薄膜EL素子によれば、低電圧を印加するだけで赤、青、緑の三原色を、高輝度かつ鋭いスペクトルで彩度よく発光するこ

とが可能である。ここで【S_a(NTFA)】(Phen)]は、塩化S_aの水溶液をPH5.5に調整し、これにPhenクロヘキセン溶液を混合して抽出を行なった。さらに、溶液を減圧下除去し【S_a(NTFA)】(Phen)]を得、これを精製した。

また、前記ポートを160℃まで加熱し、蒸着速度1.0nm/secで膜厚1.1μmの発光体薄膜を得た。このときの基板温度は、室温であった。次いで、実施例1と同様に金対向電極を形成し素子とした。

この素子に直流電圧40Vを印加したところ、電流が3.7mA流れ、赤色発光を得た。このときの発光最大波長は654nm、発光輝度は170cd/m²であった。この結果、CIE色度座標はx=0.66, y=0.32であり、鮮明な赤色であった。

実施例5

実施例1と同様の加熱ポートに、【C_e(TTA)】(Phen)]結体を200mg入れ真空槽を1×

10⁻⁴Paまで減圧した。これにより各結体の色を鮮明に変化させることができ、カラーディスプレイ等を実現することが可能になった。また、薄膜EL素子の製造も容易であり、生産性の向上を図れることも判明した。

【発明の効果】

以上のように本発明の薄膜EL素子によれば、低電圧を印加するだけで、高輝度で鮮明な色を発光できる効果を有する。

4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の薄膜EL素子のうち、DC駆動型の一実施例を示す概略構成図である。

- | | |
|---------|---------|
| 1: 蒸板 | 2: 透明電極 |
| 3: 背面電極 | 4: 発光層 |

出願人 出光興産株式会社

代理人 弁理士 渡辺 喜平

特開平1-256584(8)

手続補正書

昭和63年 4月16日

特許庁長官 小川 邦夫 殿

1. 事件の表示 63-94000

昭和63年 4月 7日付特許出願

2. 発明の名称

導電性エラストマー

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住 所 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号

名 称 出光興産株式会社

4. 代理人 電話 578-8878

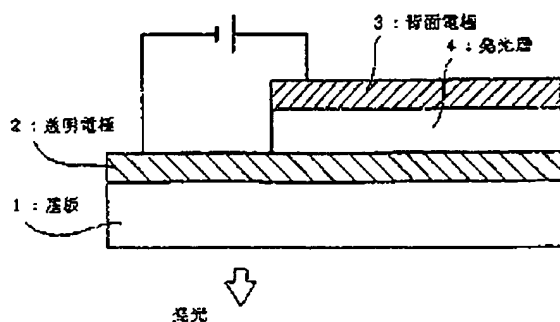
住 所 東京都港区新橋五丁目21番1号
東京第三ビル

氏 名 (8875) 弁護士 渡辺 喜平

5. 補正命令の日付 日 月 年

6. 補正の対象 明細書

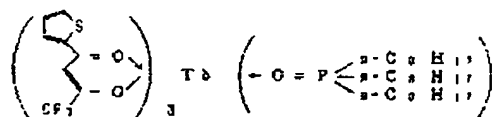
図 1



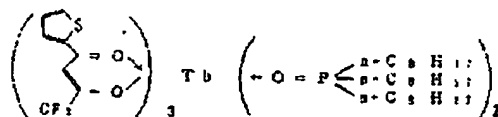
7. 補正の内容

(1) 明細書 第11頁 第10行の

「構造式」



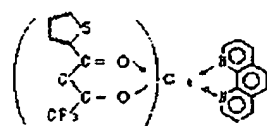
を、



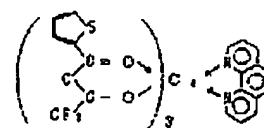
のように訂正する。

(2) 同 第12頁 第8行の

「構造式」



を、



のように訂正する。

(3) 同 第13頁～第15頁を、別紙のとおり
全文訂正する。

(4) 同第22頁第1行

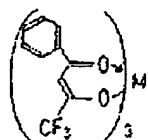
「2 × 10⁻⁴ mol」を、「2 × 10⁻⁴ mol/l」に訂正する。

(5) 同 第22頁 第2行

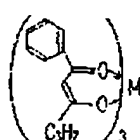
「5 × 10⁻⁴ mol」を、「5 × 10⁻⁴ mol/l」に訂正する。

以上

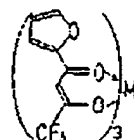
特開平1-256584 (9)

(1-1) [M(BFA)₃]

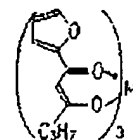
(1-4) (PhC)



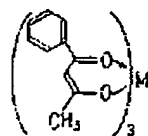
(2-1)



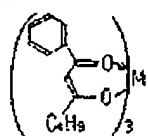
(2-4)



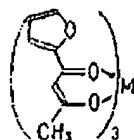
(1-2)



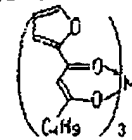
(1-5)



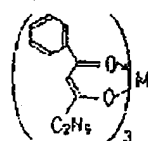
(2-2)



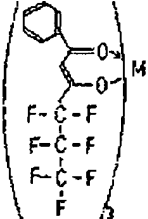
(2-5)



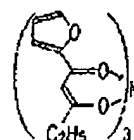
(1-3)



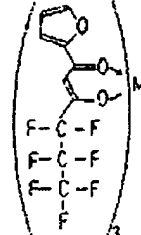
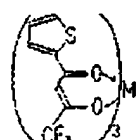
(1-6)



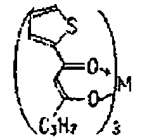
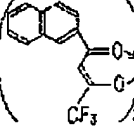
(2-3)



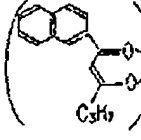
(2-6)

(3-1) [M(TFA)₃]

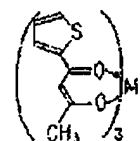
(3-4)

(4-1) [M(NTFA)₃]

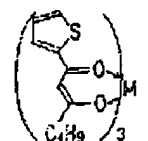
(4-4)



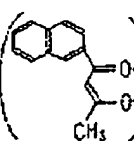
(3-2)



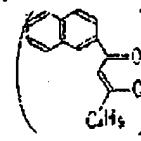
(3-5)



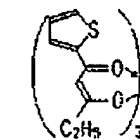
(4-2)



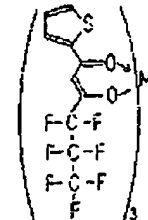
(4-5)



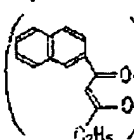
(3-3)



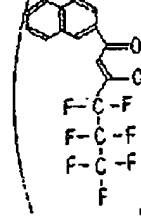
(3-6)



(4-3)



(4-6)



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.